

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

In re Patent Application of

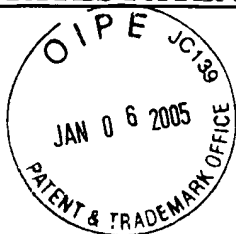
MIZUGUCHI, J. et al.

Serial No. 10/762,579

Filed: January 23, 2004

For: BLACK PERYLENE-BASED PIGMENT AND PROCESS
FOR PRODUCING THE SAME

* * * * *



Atty. Ref.: 1417-448

TC/A.U.: 1755

Examiner: Green

January 6, 2005

Commissioner for Patents
P.O. Box 1450
Alexandria, VA 22313-1450

Sir:

SUBMISSION OF PRIORITY DOCUMENTS

It is respectfully requested that this application be given the benefit of the foreign filing date under the provisions of 35 U.S.C. §119 of the following, a certified copy of which is submitted herewith:

<u>Application No.</u>	<u>Country of Origin</u>	<u>Filed</u>
2001-227693	JP	27 July 2001

Respectfully submitted,

NIXON & VANDERHYE P.C.

By: _____

Arthur R. Crawford
Reg. No. 25,327

ARC:eaw
1100 North Glebe Road, 8th Floor
Arlington, VA 22201-4714
Telephone: (703) 816-4000
Facsimile: (703) 816-4100

日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されて
いる事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed
with this Office.

願 年 月 日 2 0 0 1 年 7 月 2 7 日
Date of Application:

願 番 号 特 願 2 0 0 1 - 2 2 7 6 9 3
Application Number:
[J P 2 0 0 1 - 2 2 7 6 9 3]

願 人 よこはまティーエルオー株式会社
Applicant(s): 戸田工業株式会社

2 0 0 4 年 1 月 2 9 日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

今 井 康 夫

CERTIFIED COPY OF
PRIORITY DOCUMENT

BEST AVAILABLE COPY

【書類名】 特許願

【整理番号】 F1068

【提出日】 平成13年 7月27日

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 G03G 9/08

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県横浜市中区本牧三ノ谷 3 3 - 7

【氏名】 水口 仁

【発明者】

【住所又は居所】 広島県大竹市明治新開 1 番 4 戸田工業株式会社 大竹
創造センター内

【氏名】 志茂 伸哉

【特許出願人】

【識別番号】 801000038

【氏名又は名称】 よこはまティーエルオー株式会社

【特許出願人】

【識別番号】 000166443

【氏名又は名称】 戸田工業株式会社

【代理人】

【識別番号】 100097928

【弁理士】

【氏名又は名称】 岡田 数彦

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 003447

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 要約書 1

【物件名】 図面 1

【包括委任状番号】 9701659

【プルーフの要否】 要

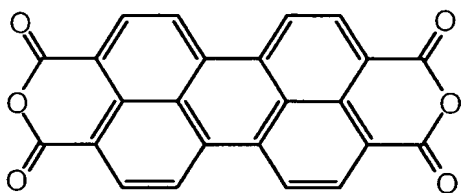
【書類名】 明細書

【発明の名称】 黒色ペリレン系顔料およびその製造方法

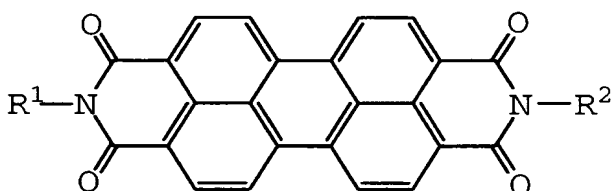
【特許請求の範囲】

【請求項 1】 下記の式 (I) ~ (IV) で示される化合物の群から選択される少なくとも 2 種の化合物の固溶体から成ることを特徴とする黒色ペリレン系顔料。

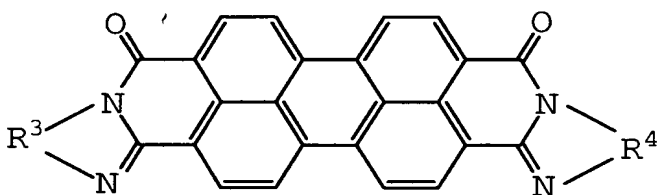
【化 1】



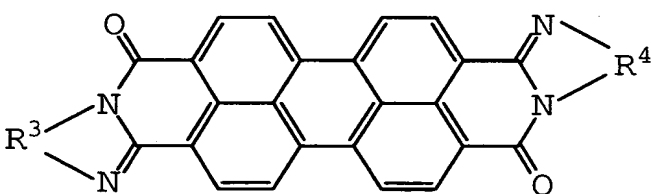
(I)



(II)



(III)



(IV)

(式中、 R^1 および R^2 は、同一または異なってもよく、それぞれ、 $-(CH_2)_n-X$ を示し (Xは、水素原子、メチル基、アルコキシ基、水酸基、フェニル

基、4' (アゾフェニル) フェニル基、アルキルフェニル基、アルコキシフェニル基、フェノール基、ハロゲン化フェニル基、ピリジル基、アルキルピリジル基、アルコキシピリジル基、ハロゲン化ピリジル基、ピリジルビニル基および1-ナフチル基を示し、 n は0～5の整数を示す。)、 R^3 および R^4 は同一または異なっているとしてもよく、それぞれフェニレン基、アルキルフェニレン基、アルコキシフェニレン基、ヒドロキシフェニレン基、ハロゲン化フェニレン基、ピリジンジイル基、アルキルピリジンジイル基、アルコキシピリジンジイル基、ハロゲン化ピリジンジイル基およびナフタレンジイル基を示し、それぞれ芳香族環の隣接した位置で結合している。)

【請求項2】 固溶体が、式(I)で示される化合物および式(II)で示される化合物の少なくとも1種の化合物(A)と式(III)で示される化合物および式(IV)で示される化合物の少なくとも1種の化合物(B)とから成る請求項1に記載の黒色ペリレン系顔料。

【請求項3】 化合物(A)が5～90モル%であり、化合物(B)が95～10モル%である請求項2に記載の黒色ペリレン系顔料。

【請求項4】 式(I)～(IV)で示される化合物の群から選択される少なくとも2種の化合物の混合物を真空中または不活性ガス雰囲気下で100～600℃の温度で焼成することを特徴とする黒色ペリレン系顔料の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、黒色ペリレン系顔料およびその製造方法に関し、詳しくは、黒色度および着色力が高く、耐熱性と耐候性が優れ、且つ、安全性および電気抵抗の高い黒色ペリレン系顔料およびその製造方法に関する。本発明に係る黒色ペリレン系顔料は、インキ、塗料、インクジェット用インキ、電子写真用トナー、ゴム・プラスチック用の着色顔料、液晶カラーフィルター用ブラックマトリックス顔料などとして有用である。

【0002】

【従来の技術】

黒色顔料としては、従来、カーボンブラック、ペリレン系顔料等が使用されている。黒色顔料として最も広く使用されており、高い着色力を有するカーボンブラックは、黒色度、耐酸性および耐候性に優れているが、粒子サイズが非常に小さく、嵩密度が高いため、取り扱いが困難で作業性が悪い問題を有する。また、電気抵抗が低いため、液晶カラーフィルター用ブラックマトリックス材の様な高抵抗が要求される用途への適用が困難であり、更に発がん性多環縮合化合物を含有するため、安全性にも問題がある。

【0003】

堅牢な顔料として広く知られているペリレン系顔料は、固体状態で赤－すみれ－茶－黒色を呈するが、その色調は熱的に必ずしも安定なものではない（W. Herbst & K. Hunger: Industrial Organic Pigments VCH出版社467-480頁（翻訳：工業有機顔料））。

【0004】

ペリレン系顔料の色調の熱的不安定性を改善するために、ペリレンテトラカルボン酸のジイミド誘導体の2種の化合物からなる固溶体（混晶）顔料が提案されている（特開昭52-103450号公報、特開昭57-139144号公報、特公昭45-33552号公報）。これらのペリレン系黒色顔料は、高い着色力を有するが、黒色度に劣り、機械的な剪断力を与えると色調が容易に変化する問題がある。特公昭45-33552号公報に記載の混晶顔料の製造方法は、混晶成分の原料化合物を溶剤に溶解し、その後、この溶液に酸などを加えて混晶顔料を沈殿させる方法である。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】

本発明は、上記実情に鑑みなされたものであり、その目的は、黒色度、耐熱性および耐候性に優れ、安全性の高い、且つ、液晶カラーフィルター用ブラックマトリックス顔料として使用可能な黒色ペリレン系顔料を提供することにある。

【0006】

【課題を解決するための手段】

本発明者らは、上記目的を達成すべく鋭意検討した結果、有機顔料の分野では

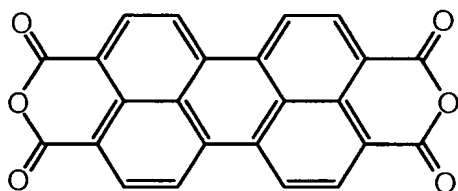
使われることがなかった焼成技術を使用し、且つ、特定の温度で特定のペリレン系顔料を焼成して得られた固溶体（黒色ペリレン系顔料）により、上記課題を解決し得ることを見出し、本発明を完成するに至った。

【0007】

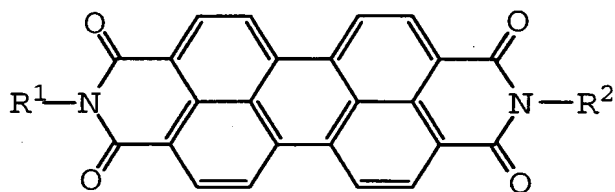
本発明は、上記の知見に基づき完成されたものであり、下記の式（I）～（IV）で示される化合物の群から選択される少なくとも2種の固溶体から成ることを特徴とする黒色ペリレン系顔料に存する。

【0008】

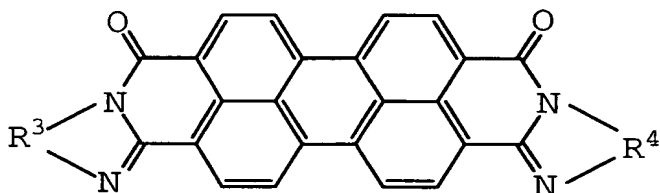
【化2】



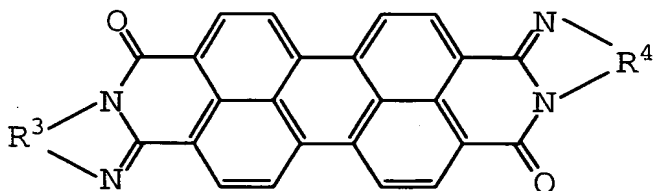
(I)



(II)



(III)



(IV)

【0009】

(式中、 R^1 および R^2 は、同一または異なっているとしてもよく、それぞれ、 $-(CH_2)_n-X$ を示し(Xは、水素原子、メチル基、アルコキシ基、水酸基、フェニル基、4' (アゾフェニル) フェニル基、アルキルフェニル基、アルコキシフェニル基、フェノール基、ハロゲン化フェニル基、ピリジル基、アルキルピリジル基、アルコキシピリジル基、ハロゲン化ピリジル基、ピリジルビニル基および1-ナフチル基を示し、 n は0~5の整数を示す。)、 R^3 および R^4 は同一または異なっているとしてもよく、それぞれフェニレン基、アルキルフェニレン基、アルコキシフェニレン基、ヒドロキシフェニレン基、ハロゲン化フェニレン基、ピリジンジイル基、アルキルピリジンジイル基、アルコキシピリジンジイル基、ハロゲン化ピリジンジイル基およびナフタレンジイル基を示し、それぞれ芳香族環の隣接した位置で結合している。)

【0010】

本発明の別の要旨は、前記の式(I)~(IV)で示される化合物の群から選択される少なくとも2種の化合物の混合物を真空中または不活性ガス雰囲気下で100~600℃の温度で焼成することを特徴とする黒色ペリレン系顔料の製造方法に存する。

【0011】

【発明の実施の形態】

以下、本発明を説明する。本発明に係る黒色ペリレン系顔料は、式(I)~(IV)で示される化合物の群から選択される少なくとも2種の固溶体(混晶)から成る。固溶体か否かは、X線回折により、原料混合物のX線回折と異なり、原料混合物のX線回折線のあるものが消失して新しい線が現れることにより確認できる。

【0012】

式(II)で示される化合物の好適な R^1 および R^2 として、水素原子、メチル基、エチル基、ブチル基、メトキシ基、エトキシ基、水酸基、フェニル基、フェニルエチル基、3-メトキシフェニル基、4-メトキシフェニル基、4-エトキシフェニル基、4-エトキシフェニルメチル基、ベンジル基、2,4-ジメチルフェニル基、2,6-ジメチルフェニル基、3,5-ジメチルフェニル基、2,4-

ージメトキシフェニル基、2, 6-ジメトキシフェニル基、2-クロロフェニル基、3-クロロフェニル基、4-クロロフェニル基、2-ブロモフェニル基、3-ブロモフェニル基、4-ブロモフェニル基、2-フルオロフェニル基、3-フルオロフェニル基、4-フルオロフェニル基、4' (アゾフェニル) フェニル基、2-ピリジル基、3-ピリジル基、4-ピリジル基、6-メチル-2-ピリジル基、5-メチル-3-ピリジル基、5-メチル-2-ピリジル基、5-メトキシ-3-ピリジル基、5-クロロ-3-ピリジル基、ピリジルビニル基および1-ナフチル基が挙げられる。

【0013】

より好適なR¹およびR²としては、ブチル基、フェニルエチル基、4-メトキシフェニルメチル基が挙げられる。

【0014】

式 (III) で示される化合物および式 (IV) で示される化合物の好適なR³およびR⁴は、フェニレン基、3-メトキシフェニレン基、4-メトキシフェニレン基、4-エトキシフェニレン基、炭素数1~3アルキルフェニレン基、ヒドロキシフェニレン基、4, 6-ジメチルフェニレン基、3, 5-ジメチルフェニレン基、3-クロロフェニレン基、4-クロロフェニレン基、5-クロロフェニレン基、3-ブロモフェニレン基、4-ブロモフェニレン基、5-ブロモフェニレン基、3-フルオロフェニレン基、4-フルオロフェニレン基、5-フルオロフェニレン基、2, 3-ピリジンジイル基、3, 4-ピリジンジイル基、4-メチル-2, 3-ピリジンジイル基、5-メチル-2, 3-ピリジンジイル基、6-メチル-2, 3-ピリジンジイル基、5-メチル-3, 4-ピリジンジイル基、4-メトキシ-2, 3-ピリジンジイル基、4-クロロ-2, 3-ピリジンジイル基およびナフタレンジイル基が挙げられる。

【0015】

より好適なR³およびR⁴は、フェニレン基、3, 4-ピリジンジイル基が挙げられる。

【0016】

式 (I) ~ (IV) で示される化合物の群から選択される少なくとも2種の化合

物の混合割合（モル％）は、通常 5～90：95～10、好ましくは 15～80：85～20 である。

【0017】

また、黒色ペリレン系顔料として、式（I）で示される化合物および式（II）で示される化合物の少なくとも 1 種の化合物（A）と式（III）で示される化合物および式（IV）で示される化合物の少なくとも 1 種の化合物（B）との固溶体から成る顔料が好ましい。

【0018】

化合物（A）の量は、通常 5～90 モル％、好ましくは 15～80 モル％、より好ましくは 20～70 モル％である。5 モル％未満の場合は、可視光波長における 500 nm 以下の吸収が相対的に小さく十分な黒色度を得ることが困難となる傾向がある。90 モル％を超える場合は、可視光波長における 600 nm 以上の吸収が相対的に小さく十分な黒色度を得ることが困難となる傾向がある。

【0019】

化合物（B）の量は、通常 95～10 モル％、好ましくは 85～20 モル％、より好ましくは 80～30 モル％である。10 モル％未満の場合は、可視光波長における 600 nm 以上の吸収が相対的に小さく十分な黒色度を得ることが困難となる傾向がある。95 モル％を超える場合は、可視光波長における 500 nm 以下の吸収が相対的に小さく十分な黒色度を得ることが困難となる傾向がある。

【0020】

次に、本発明の黒色ペリレン系顔料の製造方法について説明する。式（I）～（IV）で示される化合物の群から選択される少なくとも 2 種の化合物を通常 5～90：95～10 の混合割合（モル％）で混合し、次いで、真空中または不活性ガス雰囲気下、通常 100～600℃、好ましくは 450～550℃の温度において、通常 0.5～2 時間、好ましくは 1～2 時間焼成して固溶体（混晶）を得る。使用する不活性ガスは、ヘリウム、アルゴン等が挙げられる。得られた固溶体を磨砕処理などの通常の仕上げ処理をしてペリレン系微細顔料を得る。

【0021】

上記のペリレン系微細顔料は、前記の様に、発色団の異なる少なくとも 2 種類

のペリレン誘導体を混合し、焼成することにより得られたものであり、従って、少なくとも2種類の分子構造が均一に固溶した固溶体（混晶）となり、可視光波長領域に均一で大きな吸収を有する。

【0022】

上述の様にして得られた黒色ペリレン系顔料は、黒色度に優れ、耐熱性や耐候性に優れ、電気抵抗の高い且つ安全性の高い黒色顔料であるので、インキ用、塗料用、インクジェット用インキ用、電子写真用トナー用、ゴム・プラスチックの着色用、ブラックマトリックス用の顔料として有用である。

【0023】

【実施例】

以下、実施例により本発明を詳細に説明するが、本発明は、その要旨を超えない限り、以下の実施例に限定されるものではない。

【0024】

(1) 固溶体（混晶）の確認：

黒色ペリレン系顔料のX線回折図は、X線回折計「RINT2000」（理学電機（株）製）を使用してCu-K α 線で測定した。固溶体（混晶）のX線回折図は、各成分の回折図の和となる混合物の回折図とは異なり、各成分のX線回折線の中のあるものは消失し、新しい線が現れた回折図である。

【0025】

(2) 黒色度：

黒色ペリレン系顔料の黒色度は、可視光領域における吸収帯の最小値と最大値の比で示す（図-2の例を参照）。比の値が0.55以上の場合は、黒色度の高い黒色顔料である。比の値が0.65以上、更に好ましくは0.75以上が好ましい。試料の可視光吸収スペクトルは、分光光度「UV-2400PC」（島津製作所（株）製）で測定し、吸収帯の最小値と最大値を求めた。尚、可視光吸収スペクトルの測定用試料は、黒色ペリレン系顔料0.1gとひまし油0.5mlとの混合物をフーバーマラーでペースト状とし、得られたペーストにクリヤラッカー4.5gを加え混練して塗料化し、1milのアプリーケーターを使用してOHPシート上に作製した。

【0026】

(3) 着色力:

黒色ペリレン系顔料の着色力、耐候性および耐熱性の評価は、CIE空間（国際照明委員会（Commission Internationale de l'Eclairage）1976均等知覚色空間）に従った色度値 L^* 、 a^* 、 b^* を使用して行った。着色力は、分光色彩計カラーガイド（BYK-Gardner GmbH製）を使用して試料の L^* 値を測定し、得られた L^* 値から式： $Y(\%) = L^{*2}/100$ で表される視感反射率 Y 値を求めた。得られた視感反射率 Y 値より、JIS-Z-8721付表-2を使用してマンセルバリュー・を求めた。

【0027】

測定用試料の着色力（TS（%））は、得られた標準試料のマンセルバリュー（VA）および測定用試料のマンセルバリュー（VB）の値から、式： $TS(\%) = \{1 - (VB - VA)\} \times 100$ を使用して求めた。

【0028】

測定用試料は、黒色ペリレン系顔料0.5g、酸化チタン1.5gおよびひまし油0.5mlとの混合物をフーバーマラーでペースト状とし、得られたペーストにクリヤラッカー4.5gを加え混練して塗料化し、6mlのアプリータを使用してキャストコート紙上に塗布して得た。標準試料は、比較例1の、黒色ペリレン系顔料0.5g、酸化チタン1.5gおよびひまし油0.5mlとの混合物をフーバーマラーでペースト状とし、得られたペーストにクリヤラッカー4.5gを加え混練して塗料化し、6mlのアプリータを使用してキャストコート紙上に塗布して得た。

【0029】

(4) 耐候性:

黒色ペリレン系顔料粉末を、超高圧水銀灯（500W、ウシオ電機（株）製）下約10cmで8時間照射処理した。この様に照射処理した黒色ペリレン系顔料粉末と未照射処理の黒色ペリレン系顔料粉末を使用し、下記の方法で作製した測定用試料の色度値 L^* 、 a^* 、 b^* を測定し、得られた色度値の値から式1で表される色差（ ΔE ）で示した。色差（ ΔE ）が、0.3以下の場合は、焼成処理前

後で色相の変化がなく、耐候性に優れた黒色ペリレン系顔料である。

【0030】

【数1】

$$\Delta E = \sqrt{(L_s^* - L^*)^2 + (a_s^* - a^*)^2 + (b_s^* - b^*)^2}$$

【0031】

式中、 L_s^* 、 a_s^* 、 b_s^* は未加熱処理の黒色ペリレン系顔料の色相であり、 L^* 、 a^* 、 b^* は加熱処理された黒色ペリレン系顔料の色相である。

【0032】

測定用試料は、黒色ペリレン系顔料0.5gとひまし油0.5mlとの混合物をフーバーマラーでペースト状とし、得られたペーストにクリヤラッカー4.5gを加え混練して塗料化し、6mlのアプリータを使用してキャストコート紙上に塗布して得た。

【0033】

(5) 耐熱性:

黒色ペリレン系顔料の耐熱性は、200℃のオーブン中で1時間加熱処理した黒色ペリレン系顔料と未加熱処理の黒色ペリレン系顔料との色相を測定し、耐候性と同様に色差(ΔE)によって評価した。

【0034】

(6) 電気抵抗:

黒色ペリレン系顔料の電気抵抗を体積固有抵抗値で示す。まず、黒色ペリレン系顔料0.5gを秤量し、140kg/cm²の圧力で成形し、テフロン製ホルダで外部から完全に隔離したステンレス電極の間に、得られた試料を取り付けた。ホイーストンブリッジ(TYPE 2768、横河電機(株)製)を使用して当該試料に15Vの電圧を印可して抵抗値(R)を測定した。測定後、試料の電極面積(A cm²)と厚み(t cm)を測定し、体積固有抵抗値(X (Ω・cm))を式: $X = R / (A / t)$ より求めた。

【0035】

実施例 1

式 (II) において、X がピリジル基で $n = 2$ である R^1 および R^2 ($-\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{C}_5\text{H}_4\text{N}$) を有する化合物 120.1 g (0.2 mol) と式 (III) において、 R^3 および R^4 がフェニレン基である化合物 107.3 g (0.2 mol) とを乳鉢にて混合し、円筒状加熱調整炉中でアルゴンガス雰囲気下で 500°C の温度、1 時間加熱処理した。生成物をボールミルで粉碎して黒色顔料を得た。

【0036】

生成物の X 線回折スペクトルを測定した結果、図 1 示される様に出発物質の混合物 (比較例 2) の回折スペクトル (図 1 の下段のスペクトル) とは異なる回折スペクトル (図 1 の上段のスペクトル) が得られた。これにより生成物が、新たな固溶体の結晶構造を有していることが確認された。また、光吸収スペクトルを測定した結果、図 2 示される様に出発物質として使用した混合物 (比較例 2) の吸収スペクトル (点線のスペクトル: R^1 および R^2 が $-\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{C}_5\text{H}_4\text{N}$ である式 (II) の化合物、一点鎖線のスペクトル: R^3 および R^4 がフェニレン基である化合物) とは異なり、可視光全領域を覆うブロードな吸収をもつスペクトル (実線のスペクトル) が得られた。

【0037】

更に、得られた黒色顔料を 200°C で 1 時間加熱処理をした結果、何らの変質も見られなかった。超高圧水銀灯の 8 時間照射した結果、照射前と照射後で色相の変化が見られなかった。その結果、耐熱性および耐候性に優れていることが確認された。製造条件を表 1 に、得られた黒色顔料の諸特性を表 2 に示す。

【0038】

実施例 2 ~ 5

実施例 1 において、式 (II) で示される化合物および式 (III) で示される化合物の量を変化させた以外は、実施例 1 と同様にして黒色顔料を製造した。製造条件を表 1 に、得られた黒色顔料の諸特性を表 2 に示す。また、X 線回折スペクトルを測定した結果、出発物質の混合物の回折スペクトルとは異なる回折スペクトルが得られた。これにより得られた黒色顔料が新たな固溶体の結晶構造を有していることが確認された。

【0039】

実施例 6

実施例 1 において、式 (II) で示される化合物を式 (I) で示される化合物：ペリレンテトラカルボン酸二無水物 78.4 g (0.2 mol) に代えた以外は、実施例 1 と同様にして黒色顔料を製造した。製造条件を表 1 に、得られた黒色顔料の諸特性を表 2 に示す。また、X線回折スペクトルを測定した結果、出発物質の混合物の回折スペクトルとは異なる回折スペクトルが得られた。これにより得られた黒色顔料が新たな固溶体の結晶構造を有していることが確認された。

【0040】

実施例 7

実施例 1 において、式 (III) で示される化合物を式 (IV) において R³および R⁴がピリジル基である化合物 107.7 g (0.2 mol) に代えた以外は、実施例 1 と同様にして黒色顔料を製造した。製造条件を表 1 に、得られた黒色顔料の諸特性を表 2 に示す。また、X線回折スペクトルを測定した結果、出発物質の混合物の回折スペクトルとは異なる回折スペクトルが得られた。これにより得られた黒色顔料が新たな固溶体の結晶構造を有していることが確認された。

【0041】

実施例 8

実施例 1 において、式 (II) で示される化合物を式 (IV) において R³および R⁴がピリジンジイル基である化合物 107.7 g (0.2 mol) に代えた以外は、実施例 1 と同様にして黒色顔料を製造した。製造条件を表 1 に、得られた黒色顔料の諸特性を表 2 に示す。また、X線回折スペクトルを測定した結果、出発物質の混合物の回折スペクトルとは異なる回折スペクトルが得られた。これにより得られた黒色顔料が新たな固溶体の結晶構造を有していることが確認された。

【0042】

実施例 9

式 (II) において、 \cdot が水素で $n=0$ である R¹および R² (H) を有する化合物 (Color Index name P.V.29) 78.1 g (0.2 mol) と式 (III) におい

てR³およびR⁴がフェニレン基である化合物107.3g (0.2mol)とを使用して、実施例1と同様の方法にて黒色顔料を製造した。製造条件を表1に、得られた黒色顔料の諸特性を表2に示す。また、X線回折スペクトルを測定した結果、出発物質の混合物の回折スペクトルとは異なる回折スペクトルが得られた。これにより得られた黒色顔料が新たな固溶体の結晶構造を有していることが確認された。

【0043】

比較例1

式(II)において、Xがフェニル基でn=2であるR¹およびR²: (—CH₂—CH₂—C₅H₅)を有する化合物)の可視光吸収スペクトルを測定した。その結果、可視光波長領域の650nm以上と520nm付近の吸収スペクトルが相対的に小さく黒色度に劣るものであった(図2の点線のスペクトル)。顔料の諸特性を表2に示す。

【0044】

比較例2

式(II)において、Xがピリジル基でn=2であるR¹およびR²: (—CH₂—CH₂—C₅H₄N)を有する化合物120.1g (0.2mol)と式(III)において、R³およびR⁴がフェニレン基である化合物107.3g (0.2mol)とを乳鉢にて混合して顔料を得た。得られた顔料のX線回折スペクトルを測定した。回折スペクトル(図1の下段のスペクトル)により、得られた顔料が、混合物であることが確認された。また光吸収スペクトルを測定した結果、出発物質として使用した顔料の吸収スペクトル同じであり、可視光波長領域の650nm以上と520nm付近の吸収スペクトルが相対的に小さく黒色度に劣るものであった(図2の点線のスペクトルおよび一点鎖線のスペクトル)。更に、超高圧水銀灯の8時間照射処理と200℃で1時間加熱処理をした結果、色相の変化が見られ、耐候性および耐熱性が劣るものであった。顔料の諸特性を表2に示す。

【0045】

【表 1】

実施例	製造条件					
	式 (I) ・ 式 (II) の化合物		式 (III) ・ 式 (IV) の化合物		焼成条件	
	R ¹ およびR ²	モル%	R ³ およびR ⁴	モル%	温度 (°C)	雰囲気
実施例 1	-CH ₂ ・CH ₂ -C ₅ H ₄ N	50	フェニレン基	50	500	アルゴン
実施例 2	-CH ₂ ・CH ₂ -C ₅ H ₄ N	5	フェニレン基	95	500	アルゴン
実施例 3	-CH ₂ ・CH ₂ -C ₅ H ₄ N	25	フェニレン基	75	500	アルゴン
実施例 4	-CH ₂ ・CH ₂ -C ₅ H ₄ N	75	フェニレン基	25	500	アルゴン
実施例 5	-CH ₂ ・CH ₂ -C ₅ H ₄ N	90	フェニレン基	10	500	アルゴン
実施例 6		50	フェニレン基	50	500	アルゴン
実施例 7	-CH ₂ ・CH ₂ -C ₅ H ₄ N	50	フェニレン基	50	500	アルゴン
実施例 8	-	-	式 (III) : フェニレン基	50	500	アルゴン
			式 (IV) : ピリジンジイル基	50		
実施例 9	H	50	フェニレン基	50	500	アルゴン
比較例 1	-CH ₂ ・CH ₂ -C ₆ H ₅	100	-	-	-	-
比較例 2	-CH ₂ ・CH ₂ -C ₅ H ₄ N	50	フェニレン基	50	-	-

【0046】

【表2】

実施例	諸特性				
	黒色度 (OD _{min} /OD _{max})	着色力 (%)	体積固有抵抗値 (Ω・c m)	耐候性 (ΔE)	耐熱性 (ΔE)
実施例 1	0.77	111	10 ¹¹	<0.3	<0.3
実施例 2	0.75	113	10 ¹¹	<0.3	<0.3
実施例 3	0.77	113	10 ¹¹	<0.3	<0.3
実施例 4	0.77	111	10 ¹¹	<0.3	<0.3
実施例 5	0.75	110	10 ¹¹	<0.3	<0.3
実施例 6	0.77	111	10 ¹¹	<0.3	<0.3
実施例 7	0.77	112	10 ¹¹	<0.3	<0.3
実施例 8	0.72	110	10 ¹¹	<0.3	<0.3
実施例 9	0.77	111	10 ¹¹	<0.3	<0.3
比較例 1	0.48	100	10 ¹¹	1.5	2.1
比較例 2	0.58	103	10 ¹¹	1.3	1.8

【0047】

【発明の効果】

以上説明した本発明によれば、黒色ペリレン系顔料は、少なくとも 2 種類の分子構造が均一に固溶した可視光波長領域に均一で大きな吸収を有する固溶体（混晶）顔料で、黒色度に優れ、耐熱性や耐候性に優れ、電気抵抗の高い且つ安全性の高い黒色顔料である。それ故、インキ用、塗料用、インクジェット用インキ用、電子写真用トナー用、ゴム・プラスチック用、ブラックマトリックス用の顔料として有用である。

【0 0 4 8】

本発明の黒色ペリレン系顔料は、熱的に極めて安定であり、色の変化も皆無である。更に近赤外ならびに赤外部には吸収帯を有さないため、黒色ペリレン系顔料を含有する塗膜の近赤外・赤外領域の反射が極めて高い特長を有する。特に、黒色ペリレン系顔料を含有するポリ塩化ビニル、ポリエチレン塗膜は、日光に照射しても温度上昇が抑制され、その塗膜寿命が延びる。

【図面の簡単な説明】**【図 1】**

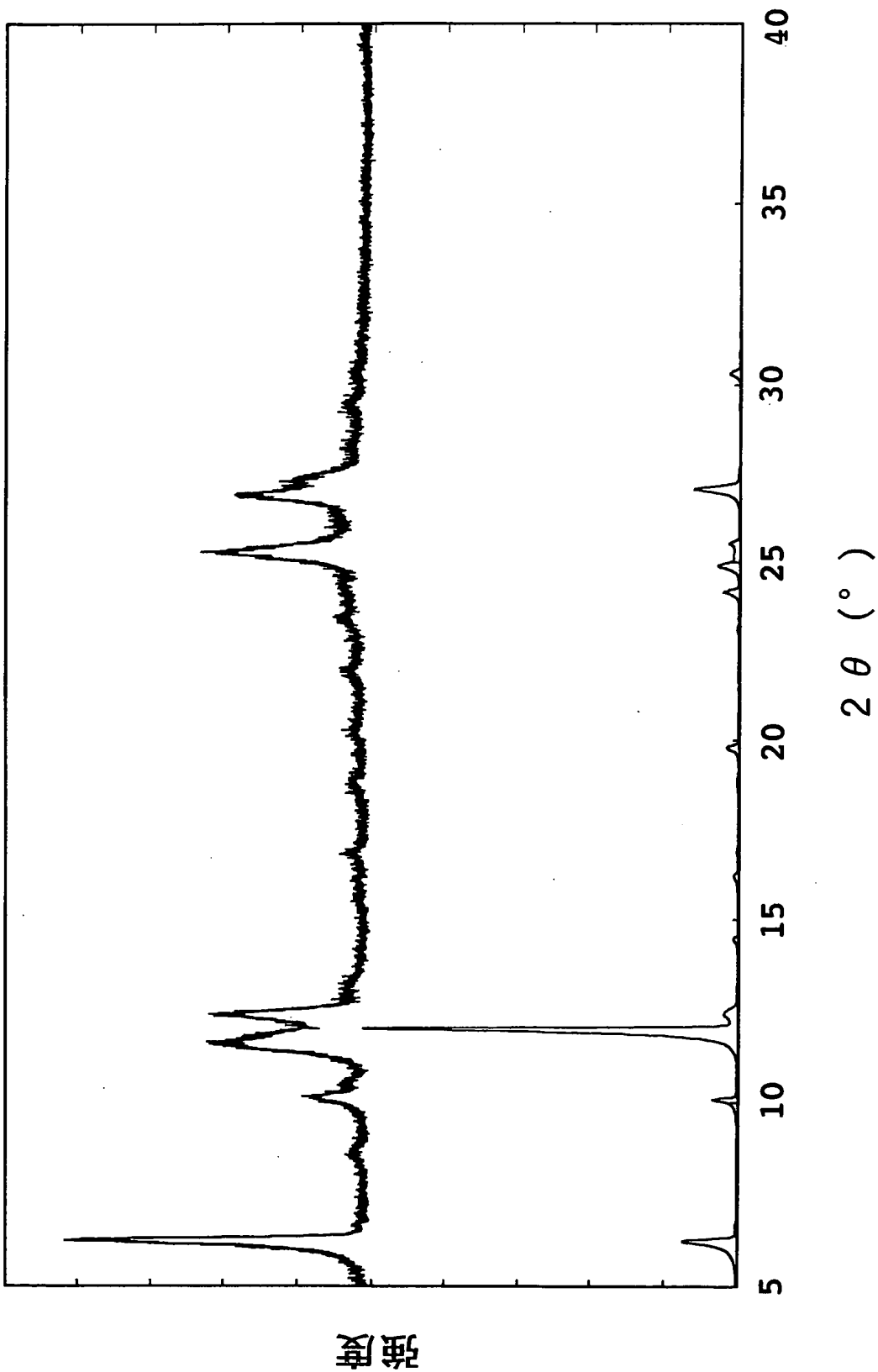
実施例 1 の黒色顔料および比較例 2 の顔料の X 線回折スペクトル図

【図 2】

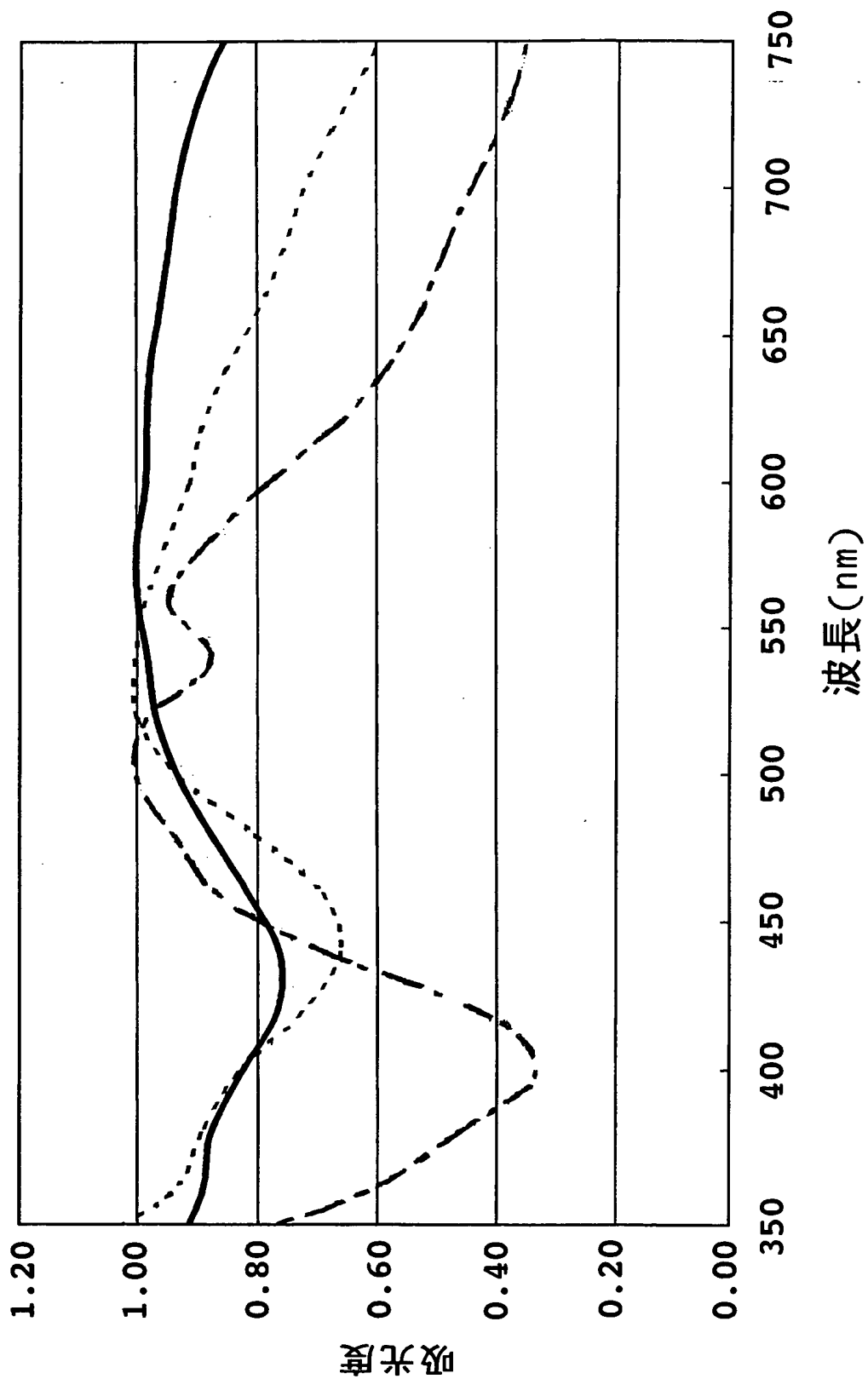
実施例 1 の黒色顔料および比較例 2 の顔料の光吸収スペクトル図

【書類名】 図面

【図 1】



【図 2】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 黒色度に優れると共に耐熱性や耐候性に優れた高抵抗の且つ安全性の高い黒色ペリレン系顔料の提供する。

【解決手段】 ペリレンテトラカルボン酸の酸無水物、ペリレンテトラカルボン酸のジイミド誘導体、ペリレンジイミノジカルボン酸のジイミド誘導体から選択される少なくとも 2 種の化合物の混合物を焼成処理して得られた固溶体から成る黒色ペリレン系顔料である。

【選択図】 なし

特願 2 0 0 1 - 2 2 7 6 9 3

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [8 0 1 0 0 0 0 3 8]

1. 変更年月日 2 0 0 1 年 5 月 2 1 日
[変更理由] 新規登録
住 所 神奈川県横浜市保土ヶ谷区東川島町 3 5 番地 5 0
氏 名 よこはまティーエルオー株式会社
2. 変更年月日 2 0 0 3 年 4 月 8 日
[変更理由] 住所変更
住 所 神奈川県横浜市保土ヶ谷区常盤台 7 9 番 5 号
氏 名 よこはまティーエルオー株式会社

特願 2 0 0 1 - 2 2 7 6 9 3

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [0 0 0 1 6 6 4 4 3]

1. 変更年月日 2 0 0 0 年 4 月 1 7 日
[変更理由] 住所変更
住 所 広島県広島市中区舟入南 4 丁目 1 番 2 号
氏 名 戸田工業株式会社
2. 変更年月日 2 0 0 3 年 1 0 月 2 日
[変更理由] 住所変更
住 所 広島県広島市南区的場町一丁目 2 番 2 1 号
氏 名 戸田工業株式会社